

University of Groningen

Molecular organic semiconductors for electronic devices

Jurchescu, Oana Diana

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version

Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:

2006

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Jurchescu, O. D. (2006). *Molecular organic semiconductors for electronic devices*. s.n.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

Samenvatting

Organische materialen komen in aanmerking voor nieuwe halfgeleidertoepassingen in plastic elektronica componenten in commerciële apparatuur. Deze materialen bieden voordelen ten opzichte van de gangbare anorganische halfgeleiders als het gaat om verwerking (er zijn slechts relatief simpele technieken zoals spin coats en printen nodig) en functionaliteit (modificatie van de moleculen biedt een rijke variëteit in functie). Veel vooruitgang is reeds geboekt in de ontwikkeling van organische elektronische devices. Grootschalig gebruik van organische Veldeffecttransistoren houdt in dat hoge eisen moeten worden gesteld aan hun prestaties, betrouwbaarheid, stabiliteit, levensduur, beheersbaarheid en reproduceerbaarheid.

Een maat voor de prestatie van een halfgeleider is de beweeglijkheid van zijn ladingsdragers. Dit is een graadmeter voor het succes van verschillende organische halfgeleiders. Het tot stand brengen van goede transporteigenschappen is inherent aan het bereiken van hoge mobiliteiten. Het onderzoek dat in dit proefschrift aan de orde komt, stelt zich ten doel om te komen tot een beter begrip van de microscopische processen die ten grondslag liggen aan de elektrische geleiding in moleculaire kristallen: het verband tussen moleculen, intermoleculaire interacties, defect dichtheden en ladingstransport. Dit proefschrift omvat naast onderzoek naar eigenschappen van organische moleculaire kristallen op het gebied van materialen (Hoofdstukken 2, 4, 5, 6), tevens onderzoek naar hun eigenschappen wanneer zij zijn ingebouwd in devices (Hoofdstuk 3). De kerndoelen van

ons onderzoek zijn enerzijds het in staat zijn om moleculaire stapeling, defect dichtheid en device opbouw in verband te brengen met elektronische eigenschappen en anderzijds om die kennis toe te passen in het ontwerp van elektronische devices met verbeterde prestaties. Onderzoek in het verleden werd bemoeilijkt door de slechte reproduceerbaarheid van meetresultaten en de aanwezigheid van structuurdefecten, zodat de metingen aan intrinsieke eigenschappen ontoegankelijk waren. In de laatste jaren is een ongekende beheersing mogelijk van zowel de structuureigenschappen op moleculaire schaal als van de ladingsdichtheidsverdeling door een beter begrip van materiaaleigenschappen van organische halfgeleiders en een zorgvuldig ontwerp van de device opbouw.

Binnen deze algemene context bestuderen we in het bijzonder éénkristallen van *pentaceen* en *rubreen*, moleculaire geleiders met de tot dusver hoogst gerapporteerde mobiliteiten. Hoewel dergelijke materialen in de hoedanigheid van éénkristal nooit aan de algemeen geldende eisen voor toepassing op grote schaal kunnen voldoen, verschaffen deze éénkristallen ons toch een uniek instrumentarium voor onderzoek naar intrinsieke eigenschappen en bieden zij ons tevens model systemen. Van de materialen waar wij ons op richten, groeien we éénkristallen en bepalen hun kristalstructuur door middel van Röntgendiffractie. Verder doen wij onderzoek naar de chemische en fysische eigenschappen van pentaceen. De bepaling van dergelijke eigenschappen berust op het gebruik van infrarood-, UV-Vis- en massaspectroscopie in combinatie met vloeistofchromatografie met hoog oplopend vermogen. We maken gebruik van ruimteladingsbegrensd stroom- en veldeffecttransistor metingen om de ladingstransporteigenschappen te bestuderen.

In hoofdstuk 2 tonen we aan dat de zuiverheid van het materiaal een sterke invloed heeft op de prestaties van de elektronische devices. Onzuiverheden kunnen elektrisch actieve toestanden in de band gap van halfgeleiders introduceren, of de ladingsverdeling in het aangrenzende kristalvolume verstoren. Op die manier beïnvloeden zij in sterke mate de elektronische eigenschappen van organische kristallen. We verrichten een kwantitatieve analyse op pentaceenchinon, de belangrijkste onzuiverheid in pentaceen éénkristallen. Bovendien tonen we aan dat het terugbrengen van de concentratie van deze onzuiverheid met een factor vijf (van 0.11% naar 0.028%) resulteert in een afname met twee ordes van grootte van het aantal afgevangen ladingsdragers (van $N_t = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ naar $N_t = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) en ook de mobiliteit hoger wordt ($\mu = 35 \text{ cm}^2/\text{Vs}$).

In de analyse corrigeren we voor de effectieve kristaldikte die wordt veroorzaakt door de anisotrope weerstand en de verdeling van het elektrische veld binnen het materiaal. Een gedetailleerde beschrijving van het algoritme wordt behandeld in hoofdstuk 4. In hoofdstuk 3 komt aan bod dat pentaceenchinon onzuiverheden

zich bij voorkeur aan het kristaloppervlak bevinden en bovendien daar de geleiding in sterke mate beïnvloeden door ladingsdragers te verstrooien. Door onzuiverheden die fungeren als strooicentra om te vormen tot gate diëlectricum, kan deze belemmering worden verholpen. De transistoren die op deze manier vervaardigd zijn, hebben een aan/uit verhouding van 10^6 en mobiliteiten die overeenstemmen met de waarden die zijn gevonden voor het bulk materiaal.

Organische elektronische devices moeten hun taak kunnen blijven vervullen wanneer ze worden blootgesteld aan de lucht. Daarom is de invloed van vocht en zuurstof van belang voor hun gedrag. Ons werk richt zich op het verbeteren van de prestaties en betrouwbaarheid van organische devices. Hiertoe onderzoeken we de fysische processen die de elektrische eigenschappen van deze materialen bepalen in de aanwezigheid van lucht. We tonen aan in hoofdstuk 5 dat de zuurstof/waterdamp die aanwezig is in de lucht diffundeert in het kristal. Dit diffusieproces genereert gaten/vallen, wat leidt tot verbetering/verslechtering van de geleiding. De twee effecten zijn in competitie, treden gezamenlijk op en kunnen van vergelijkbare orde van grootte zijn. Door elektrische en thermogravische metingen te combineren verschaffen we ons een kwantitatief beeld van deze effecten. We hebben vastgesteld dat er in de aanwezigheid van licht gemiddeld twee O_2 moleculen nodig om een gat te creëren, vergeleken met vier moleculen in het donker. Hoofdstuk 6 behandelt rubreen éénkristallen. We brengen de enorme verandering in mobiliteit bij 175 K in verband met veranderingen in kristalstructuur met behulp van overdrachtsmatrixelement tussen naburige moleculen. DSC metingen duiden op een fase overgang bij 175 K, maar hiervoor zijn geen aanwijzingen gevonden in een Röntgendiffractie studie.

We hebben hoge mobiliteiten bereikt door een uitgebalanceerde beheersing van de zuiverheidsgraad van de gebruikte materialen. Verder hebben we op succesvolle wijze devices vervaardigd en organische FETs gemeten die in staat waren de hoge mobiliteiten te reproduceren zoals die gevonden waren in experimenten die de bulk eigenschappen in kaart plegen te brengen. Onze belangstelling gaat uit naar een breed onderzoeksgebied en combineert kristalgroei, kristal structuurbepaling en ladingstransport metingen. Het werk dat in dit proefschrift aan de aan de orde komt, geeft inzicht in de fysische processen zoals het ontstaan en de migratie van defecten in organische kristallen, omgevingseffecten en effecten op de elektrische geleiding van moleculaire kristallen die gerelateerd zijn aan de device opbouw.

